

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 11214216
 PUBLICATION DATE : 06-08-99

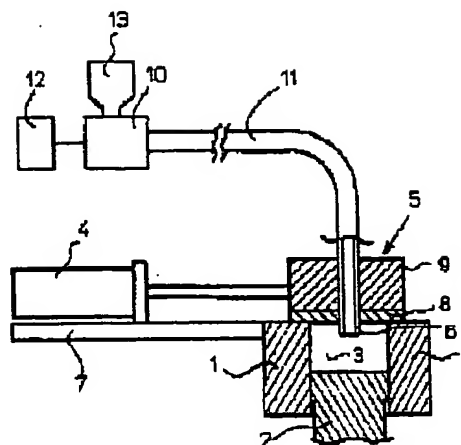
APPLICATION DATE : 27-01-98
 APPLICATION NUMBER : 10014694

APPLICANT : HITACHI METALS LTD;

INVENTOR : HONDA MASANORI;

INT.CL. : H01F 7/02 H01F 1/053 H01F 1/08

TITLE : RARE EARTH PERMANENT MAGNET
 AND MANUFACTURE THEREOF



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To mold slurry by fully filling a cavity with by inserting a supply tube communicated with a slurry supply means into the cavity, and filling the cavity of the molding machine with the slurry, while injecting the slurry and taking out the slurry supply tube as needed.

SOLUTION: A dice 1 is lifted, a cavity 3 having a specified capacity is formed on the upper part of a lower punch 2, a slurry supply tube 6 is brought down and its leading edge is held at a prescribed position close to the upper plane of the lower punch 2. Then, a slurry supply means 10 is operated to supply the cavity 3 with slurry 100 in a tank 13, through piping 11 and the slurry supply tube 6. Then, before the slurry supply means 10 completes supplying a prescribed quantity, the slurry supply tube 6 is lifted to store its leading edge in a sliding board 8. This the lifting operation may be performed in a timing where the capacity held by the slurry tube 6 is supplied in time.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

特開平11-214216

(43) 公開日 平成11年(1999) 8月6日

(51) Int.Cl.⁶ 識別記号H 0 1 F 7/02
1/053
1/08

F I

H 0 1 F 7/02
1/04
1/08E
H
B

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平10-14694

(22) 出願日 平成10年(1998) 1月27日

(71) 出願人 000005083

日立金属株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72) 発明者 三家本 司

埼玉県熊谷市三ヶ尻6010番地 日立金属株
式会社生産システム研究所内

(72) 発明者 本多 正典

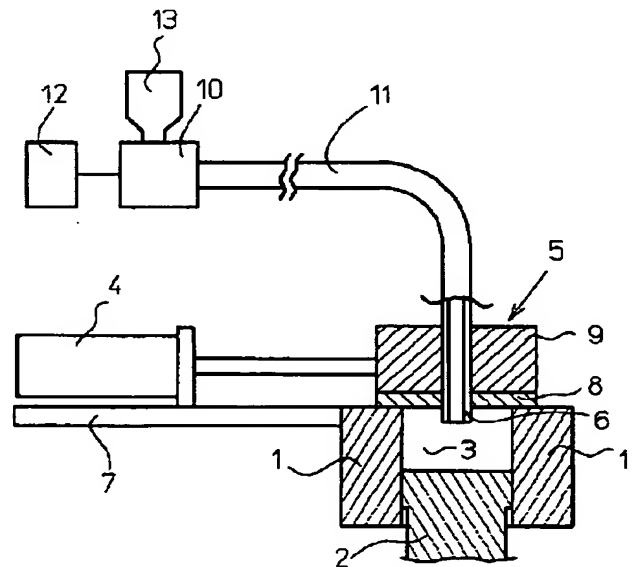
埼玉県熊谷市三ヶ尻6010番地 日立金属株
式会社生産システム研究所内

(54) 【発明の名称】 希土類永久磁石の製造方法及び希土類永久磁石

(57) 【要約】

【課題】 希土類永久磁石の湿式成形に用いるスラリーは、供給安定性のために予め70%以上に濃縮しておくことが望ましい。しかし、開口部の縦又は横寸法に比して深さが深い形状のキャビティにおいては、このような高濃度なスラリーは、空気の巻込まれやキャビティ内への空気の残存により、隅々まで十分充填し難いという問題がある。

【解決手段】 スラリーを70～85重量%に調整し、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管の先端をキャビティ底部近傍に挿入し、スラリーをキャビティの底部から上方に向けて吐出しながら適宜引き抜いて充填し、加圧方向と垂直に印加磁界を加えて加圧成形して成形体を得る希土類永久磁石の製造方法及び希土類永久磁石である。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 R-Fe-B系(RはYを含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(スラリーと称す)を成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結する希土類永久磁石の製造方法において、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管を成形機のキャビティに挿入し、スラリーを吐出しながら引き抜いてスラリーをキャビティに充填することを特徴とする希土類永久磁石の製造方法。

【請求項2】 70～85重量%のスラリーを用い、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管の先端をキャビティ底部近傍に挿入し、スラリーをキャビティの底部から上方に向けて吐出しながら引き抜いて充填し、加圧方向と垂直に印加磁界を加えて加圧成形する請求項1に記載の希土類永久磁石の製造方法。

【請求項3】 キャビティは開口部短辺相当寸法Tが2mm以上で、深さHが $H=1.2T-1.7$ 以上の範囲にある請求項2に記載の希土類永久磁石の製造方法。

【請求項4】 R-Fe-B系(RはYを含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(スラリーと称す)を、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管を成形機のキャビティに挿入してスラリーを吐出しながら引き抜いて成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結したことを特徴とする希土類永久磁石。

【請求項5】 R-Fe-B系(RはYを含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(スラリーと称す)を成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結した希土類永久磁石であって、開口部短辺相当寸法Tが2mm以上で、深さHが $H=1.2T-1.7$ 以上の寸法範囲にある成形機のキャビティにスラリー供給管を挿入し、キャビティの底部から上方に向けて充填したスラリーを、加圧方向と垂直に印加磁界を加えて加圧成形したことを特徴とする希土類永久磁石。

【請求項6】 成形体形状がアーク状である請求項4又は5に記載の希土類永久磁石。

【請求項7】 成形体形状がリング状であり、そのキャビティの厚さと深さが、前記のTとHに相当する請求項4又は5に記載の希土類永久磁石。

【請求項8】 請求項1乃至3のいずれかに記載の製造方法で製造し、焼結体の組成が重量百分率でR(RはYを含む希土類元素のうち1種または2種以上)が27.0～31.0%、Bが0.5～2.0%、Nが0.02～0.15%、Oが0.25%以下、Cが0.15%以

下、残部がFeであることを特徴とする希土類永久磁石。

【請求項9】 Feの一部を、Nb 0.1～2.0%、Al 0.02～2.0%、Co 0.3～5.0%、Ga 0.01～0.5%、Cu 0.01～1.0%のうち1種または2種以上で置換することを特徴とする請求項8に記載の希土類永久磁石。

【請求項10】 成形体の個々の重量ばらつきが3%以下である請求項4乃至9のいずれかに記載の希土類永久磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、R-Fe-B系(RはYを含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と溶媒の混合物であるスラリーを成形機の金型に供給して加圧成形し、得られた成形体を焼結する希土類永久磁石の製造方法及び希土類永久磁石に関するものである。

【0002】

【従来の技術】希土類永久磁石は高磁気特性を得られる磁石として知られており、原料金属を溶解し、鋳型に注湯して得られたインゴットを粉砕、成形、焼結して製造するが、原料粉末である希土類永久磁石用粉末は、微粉砕後化学的に非常に活性になるため、いかに酸化を防止するかが製造技術上大きなポイントである。この点で、乾粉状態で成形する従来の乾式成形法によって製造した焼結体の酸素量の水準は、低いものでも0.4%台であるのに対し、新たに開発された湿式成形法、即ち原料粉末と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(以下、スラリーと称す)を作成し、スラリー濃度を調整後、金型のキャビティに供給し、混合物中の溶媒を濾過しながら加圧成形を行う方法、によって製造した焼結体は、酸素量を0.25%以下にすることが可能であり、適切な原料組成を選定することで、保持力*iHc*を維持しつつ、高い残留磁束密度*B_r*と最大エネルギー積(*BH*)_{max}を得ることができる。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】湿式成形に用いるスラリーは、濃度が低い方が流動性は良好で狭部を有するキャビティに充填できるが、濃度が70%未満では溶媒である油が多すぎて上澄みが生じ易く、原料粉末の供給量が不安定となり実用的ではない。このため、予め70%以上に濃縮しておくことが望ましいが、このような高濃度なスラリーは、乾式成形法に用いる乾粉以上に充填性が悪く、キャビティの大きさや形状によっては隅々まで十分充填し難いという問題がある。

【0004】前述したように希土類永久磁石は高磁気特性を得られるが、より特性の高いものが求められるだけでなく、薄肉でかつ微粉が薄肉面に直交する方向に磁気配向しているような製品の要求が多くなっている。一般

に、スラリーを成形機で磁場成形する方法には、磁界の印加方法と垂直に加圧成形する方法（横磁場成形と称す）と、平行に加圧成形する方法（縦磁場成形と称す）の２種類があり、後述するように横磁場成形の方が縦磁場成形に比べて高磁気特性を得やすい。このため前記のような薄肉形状品を成形する場合、上下方向から加圧する成形機では、磁界方向は水平となるため、キャビティは薄肉面が垂直になるように形成される。即ち開口部の縦又は横寸法に比して深さが深い形状となる。このような形状のキャビティでは、必要なスラリー量とキャビティ体積がほぼ等しくなるようなキャビティ深さとし、キャビティ深さをあまり深くしないようにすることが多い。しかし、それでも高濃度のスラリーを隅々まで充填することは難しく、磁気特性を犠牲にして縦磁場成形するか、ブロック状のものを横磁場成形し、後で切出す等により製造している。しかし、後者のプロセスでは曲率を有するもの、例えばアーク状やリング状のものは、加工が難しい等形状の制約がある他、製造プロセスの増加、材料歩留まりの低下等の問題がある。

【０００５】特開平 9 - 9 4 8 1 4 号に、希土類永久磁石の湿式成形用原料供給装置が開示されている。これは図 4 に示すように、スラリーの定量供給手段 5 0 と、定量供給手段 5 0 と配管で連結され、キャビティ 5 3 を有するダイス 5 1 上面を駆動手段 5 4 で摺動自在な供給ヘッド 5 5 を有し、供給ヘッド 5 5 には供給ノズル 5 6 を設けた装置である。供給ヘッド 5 5 を供給ノズル 5 6 がキャビティ 5 3 の開口部中央位置にくるように移動して定量供給手段 5 0 を作動し、供給ノズル 5 6 を通してスラリーをキャビティ 5 3 上方より供給し、供給が終了したら供給ヘッド 5 5 をダイス 5 1 上から退避するものである。しかし前記装置を用い、前述したような形状のキャビティにはほぼ満杯になるように高濃度のスラリーを充填しようとする場合、１０％程度の重量バラツキが発生してしまう。これはスラリーへの空気の巻込まれ及びキャビティ内への空気の残存によるもので、特にスラリーの供給速度を早くするとより問題となる。この現象を図 5 を用いて説明する。

１）注入初期（図 5（a））

供給ノズル 5 6 により、キャビティ 5 3 の上方から注入されたスラリー 1 0 0 は、キャビティ 5 3 の底つまり下パンチ 5 2 の上面に到達し、スラリーの柱を生じる。

２）注入中期（図 5（b））

このスラリー柱が、スラリーの自重による落下と広がりを生じる前に、供給ノズル 5 6 から次のスラリー 1 0 0 が連続的に供給されるため、キャビティ上方の供給ヘッド 5 5 下面でスラリーが広がりながら注入される。

３）注入終期（図 5（c））

ダイス 5 1、下パンチ 5 2 及び供給ヘッド 5 5 で囲まれたキャビティは気密性が高く、内部の空気が逃げ難いため、スラリー中に空気を巻込むとともに、供給完了後も

隅部に空気が残ってしまう。

【０００６】

【課題を解決するための手段】本発明は、 $R-Fe-B$ 系（ R は Y を含む希土類元素のうち１種または２種以上）希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物（以下スラリーと称す）を、キャビティの隅々まで供給して湿式成形を行う希土類永久磁石の製造方法、及びこれを用いて製造した希土類永久磁石を得るための横磁場成形を可能とすることを目的としている。なお、ここで言うスラリーとは、酸化防止用に開発された前述した湿式成形法に用いる不活性雰囲気下（窒素雰囲気など）で溶媒中に微粉碎直後の原料粉末を投入して作成したものだけでなく、大気中で製造した例えば乾式成形用の乾粉に溶媒を加えたようなものも含む。本発明の希土類永久磁石の製造方法は、スラリーを濃縮して、成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結する希土類永久磁石の製造方法において、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管をキャビティに挿入し、スラリーを吐出しながら適宜引き抜いてスラリーを成形機のキャビティに充填することを特徴としている。スラリー供給管の引き抜きタイミングは、スラリーの吐出開始と同時に徐々に引き上げてもよいし、最初は停止状態で吐出し、その後そのまま吐出しながら又は吐出せずに引き上げるようにしてもよい。なお、キャビティ上方は開放したままでもよいが、通気性を保ちながら遮蔽しておくほうがよい。この遮蔽手段により、上方に盛上がったスラリーは速やかに横方向に均されるとともに、供給量が多少多目であってもまわりにあふれることがない。

【０００７】また、詳しくはスラリーを 7 0 ～ 8 5 重量％に調整し、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管の先端をキャビティ底部近傍に挿入し、スラリーをキャビティの底部から上方に向けて吐出しながら適宜引き抜いて充填し、加圧方向と垂直に印加磁界を加えて加圧成形して成形体を得る希土類永久磁石の製造方法である。スラリー濃度の限定理由は次の通りである。前述したように、スラリーの濃度は 7 0 ％未満では溶媒である油が多すぎて上澄みが生じ易くなり、原料粉末の供給量が不安定となる。また 8 5 ％を越えると、供給配管内で詰まりが生じやすくなるとともに、キャビティへの充填性が悪くなるという供給性面の問題がある。

【０００８】また、磁気特性面からも 7 0 ～ 8 5 ％の範囲が望ましい。前述したように、スラリーを成形機のキャビティ内で磁場成形する方法には、横磁場成形と、縦磁場成形の２種類があり、必要な製品形状と磁気特性から成形方法を選定する。一般に成形機は垂直方向から加圧するため、横磁場成形における成形体は、直方体などの単純形状のものがほとんどであるが、縦磁場成形に比べて高磁気特性が得られやすい。しかし、スラリー濃度

が85%を越えると、印加磁界に対するスラリー中の微粉の配向性が低下し、磁気特性の内特に残留磁束密度 B_r が低下する。縦磁場成形では、成形体形状は扇形など複雑形状も可能であるが、横磁場成形ほどの磁気特性を得にくい。これは、磁界の印加方向と成形の加圧方向が平行なため、いったん配向した微粉の配向性が加圧成形時に乱されるためであり、横磁場成形に比べて残留磁束密度 B_r は低いものとなるが、スラリー濃度が高いほど加圧成形から受ける配向の乱され方は少ないという傾向にある。このため、縦磁場成形ではスラリー濃度が高いほど得られる残留磁束密度 B_r が高くなり、特にスラリー濃度が70%以上でこの傾向が顕著になる。しかし、スラリー濃度が85%を越えると、横磁場成形と同じ理由で配向性が低下し、残留磁束密度 B_r は低下する。図6に、湿式成形法で成形した重量百分率でNd 27.5%、Pr 1.0%、Dy 1.5%、B 1.0%、Nb 0.5%、Al 0.05%、Co 2.0%、O 0.15%、0.05%、C 0.075%、残Feの組成を有する焼結体の、成形方法とその時のスラリー濃度による得られた残留磁束密度 B_r の関係を示す。以上スラリー濃度について説明した。

【0009】金型に形成されるキャビティは、最終製品にできるだけ近い形状のものが望ましい。しかし、一辺が薄肉の直方体或いは曲率体、さらには扇形等の複雑形状品、あるいは薄肉のリング品に対して、薄肉面に直交するように磁場を配向する横磁場成形を行なう場合、キャビティへの原料供給の良否で大きさと形状が決定される。本発明者らは、従来の工場生産レベルの供給方法において、キャビティの寸法とその時の成形体重量、密度、体内の特性バラツキ等の関係について研究し、生産レベルで良好に製造できるための製品には、キャビティの開口部の短辺相当寸法 T と深さ寸法 H に相関があることを見出した。図7に境界付近にある成形体のものについての状況を示す。スラリーをキャビティの上方から供給する前述した湿式成形用原料供給装置におけるような方法を用いた場合、境界はラインAで示すことができる。一方、乾式成形法においては、キャビティ上を給粉ボックスを移動させて行なう摺り切り揺動式で供給する場合、境界はラインBで示すことができる。ラインA及びBは、各々概略下式で表すことができる。

$$A: H = 7T - 8 \quad (\text{ただし } T \geq 2.5)$$

$$B: H = 12T - 17 \quad (\text{ただし } T \geq 2.5)$$

これは、スラリー濃度が70%を超えるようなものは前述したような問題点があり、狭い隙間のもの程顕著なためである。乾粉の場合は、スラリーほど流動性は悪くないが、造粒した粉体でないため磁性凝集し易く、やはり上記と同様な問題があるからである。なお短辺相当寸法 T とは、図8(a)、(c)に示すように矩形類似形状(アーク状を含む)のものでは短辺そのものであるが、図8(b)に示すリング状のものでは厚さ、図8(d)

に示すような太鼓状のものでは短手方向の対辺寸法、その他の形状では、三角状のものでは対辺に下ろした垂線のうち短いもの、円状のものでは半径である。本発明においては、スラリー供給管をキャビティに挿入して下部より徐々にスラリーを充填していくので、開口部の短辺相当寸法はスラリー供給管外径より大きければよく、基本的には深さ方向の制約はない。スラリー供給管は非磁性の剛性のあるパイプを用いるが、その内径はスラリー吐出圧を高くすれば1mm程度でもよいが、スラリーの詰まりを考慮すると2mm以上あることが好ましく、これより短辺相当寸法が3mm以上のものに適用するのが望ましい。

【0010】本発明の希土類磁石は、 $R-Fe-B$ 系(R は Y を含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(スラリーと称す)を、スラリーの供給手段に連通したスラリー供給管を成形機のキャビティに挿入してスラリーを吐出しながら引き抜いて成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結したものである。また本発明の希土類永久磁石は、 $R-Fe-B$ 系(R は Y を含む希土類元素のうち1種または2種以上)希土類永久磁石用微粉と鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒とした混合物(スラリーと称す)を成形機のキャビティに供給し、加圧成形し、この成形体に含まれる溶媒を除去後焼結した希土類永久磁石であって、開口部短辺相当寸法 T が2mm以上で、深さ H が $H = 12T - 17$ 以上の寸法範囲にある成形機のキャビティにスラリー供給管を挿入し、キャビティの底部から上方に向けて充填したスラリーを、加圧方向と垂直に印加磁界を加えて加圧成形したことを特徴としている。なお、前記の薄肉長尺の希土類永久磁石は、原材料のキャビティへの供給という問題を解決したこと他に、溶媒により金型のかじりを防止できることにより工業的に実現できるものであり、乾式成形法では実現できないものである。特に最終形状がアーク状をしたものやリング状をしたものは、横磁場成形で最終形状に近いものを得ることができるため、高特性のものが実現でき、産業上極めて有用である。また本発明の希土類永久磁石は、前記の製造方法で製造し、成形体の個々の重量ばらつきが適切な製造条件下では3%以下と極めて小さく、焼結体の組成が重量百分率で R (R は Y を含む希土類元素のうち1種または2種以上)が27.0~31.0%、 B が0.5~2.0%、 N が0.02~0.15%、 O が0.25%以下、 C が0.15%以下、残部が Fe であることを特徴としている。前記希土類永久磁石は、その組成の Fe の一部を Nb 0.1~2.0%、 Al 0.02~2.0%、 Co 0.3~5.0%、 Ga 0.01~0.5%、 Cu 0.01~1.0%のうち1種または2種以上で置換することができる。

【0011】組成の限定理由は次のとおりである。湿式

成形法においては希土類元素の酸化防止が充分になされるため、希土類元素の量は、重量百分率で 27.0~31.0%とされる。希土類元素の量が 31.0%を越えると、焼結体内部の R r i c h 相の量が多くなり、かつ形態が粗大化して耐蝕性が悪くなる。一方、希土類元素の量が 27.0%未満であると、焼結体緻密化に必要な液相量が不足して焼結体密度が低下し、同時に磁気特性のうち残留磁束密度 B r と保持力 i H c が共に低下する。従って、希土類元素の量は 27.0~31.0%とされる。O の量は、重量百分率で 0.05~0.25%とされる。O の量が 0.25%を越える場合には、希土類元素の一部が窒化物を形成し、磁氣的に有効な希土類元素が減少して保持力 i H c が低下する。前述したように、R-F e-B 系希土類永久磁石のこれまでの製造方法としては、一般に乾式法が採用されてきた。そのため、希土類元素の酸化防止が充分とはならず、酸素量の水準は、低いものでも 0.4%台であった。そのため、一定水準の保持力 i H c を維持するためには、希土類量を少なくとも 31%を越える値とする必要があり、そのため得られる残留磁束密度 B r と最大エネルギー積 (B H) m a x は低い値となった。湿式成形法によって、R-F e-B 系希土類永久磁石焼結体の酸素量を、0.25%以下にすることが可能となり、これによって、保持力 i H c を維持しつつ、本発明の 27~31%の範囲に希土類量を低減することができるために、高い残留磁束密度 B r と最大エネルギー積 (B H) m a x を得ることができる。一方溶解によって作製するインゴットの O 量の水準は最大 0.04%であるため、最終焼結体の O 量をこの値以下とすることは困難であり、これより O 量は 0.05~0.25%とすることが好ましい。

【0012】C量は、重量百分率で 0.01~0.15%とされる。Cの量が 0.15%より多い場合には、希土類元素の一部が炭化物を形成し、磁氣的に有効な希土類元素が減少して、保持力 i H c が低下する。C量は、0.12%以下とすることがより好ましく、0.10%以下とすることがさらに好ましい。一方、溶解によって作製するインゴットの C 量の水準は最大 0.008%であり、最終焼結体の C 量をこの値以下とすることは困難であり、焼結体の C 量は 0.01~0.15%とすることが好ましい。本発明者らの研究成果によると、R-F e-B 系希土類永久磁石の耐蝕性の改善に対しては、希土類元素の量を 31.0%以下とすることは必要条件であるが十分条件ではない。これにはさらに、焼結体中の N 量を厳密に制御する必要がある。上記の組成範囲の希土類元素、O 量、C 量を有する R-F e-B 系希土類永久磁石において、焼結体中の N 量を所定範囲とすることによって、優れた耐蝕性と高い磁気特性を両立させることができる。焼結体中の N 量は重量百分率で 0.02~0.15%とする必要がある。N の含有による耐蝕性の改善効果のメカニズムについては必ずしも明確ではない

が、焼結体中の N は主に R r i c h 相に存在し、希土類元素の一部と結合して窒化物を形成していることから、この窒化物の形成が R r i c h 相の陽極酸化を抑制しているものと考えられる。N の量が 0.02%より少ない場合には、窒化物の形成量が少ないためか、焼結体の耐蝕性の改善効果はみられない。N の量が 0.02%以上では、N の量の増加に従って焼結体の耐蝕性も向上するが、N の量が 0.15%を越えると保持力 i H c が急激に低下する。これは、窒化物の形成による磁氣的に有効な希土類元素の減少によるためと考えられる。以上の理由から、N 量は、0.02~0.15%とされる。さらには、N 量は 0.03~0.13%とすることが好ましい。

【0013】本発明の R-F e-B 系希土類永久磁石においては、F e の一部を N b, A l, C o, G a, C u のうち 1 種類または 2 種類以上で置換することができ、以下に各元素の置換量（ここでは置換後の希土類永久磁石の全組成に対する重量百分率）の限定理由を説明する。N b の置換量は、0.1~2.0%とされる。N b の添加によって、焼結過程で N b のほう化物が生成し、これが結晶粒の異常粒成長を抑制する。N b の置換量が 0.1%より少ない場合には、結晶粒の異常粒成長の抑制効果が不十分となる。一方、N b の置換量が 2.0%を越えると、N b のほう化物の生成量が多くなるため、残留磁束密度 B r が低下する。A l の置換量は、0.02~2.0%とされる。A l の添加は保持力 i H c を高める効果がある。A l の置換量が 0.02%より少ない場合には、保持力の向上効果が少ない。置換量が 2.0%を越えると、残留磁束密度 B r が急激に低下する。C o の置換量は、0.3~5.0%とされる。C o の添加はキュリー点の向上すなわち飽和磁化の温度係数の改善をもたらす。C o の置換量が 0.3%より少ない場合には、温度係数の改善効果は小さい。C o の置換量が 5.0%を越えると残留磁束密度 B r, 保持力 i H c が共に急激に低下する。G a の置換量は、0.01~0.5%とされる。G a の微量添加は保持力 i H c の向上をもたらすが、置換量が 0.01%より少ない場合には、添加効果は小さい。一方、G a の置換量が 0.5%を越えると、残留磁束密度 B r の低下が顕著になるとともに、保持力も低下する。C u の置換量は、0.01~1.0%とされる。C u の微量添加は、保持力 i H c の向上をもたらすが、添加量が 1.0%を越えるとその添加効果は飽和する。添加量が 0.01%より少ない場合には、保持力 i H c の向上効果は小さい。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明の実施の形態について詳述する。図 2 に希土類永久磁石の製造工程を示す。N d-F e-B 系希土類永久磁石原料合金を微粉碎し、得られた微粉を鉱物油の溶媒中に回収し、スラリーを作成する。このスラリーを加圧成形に適したスラリー濃度に調

整し、成形機のキャビティに隅々まで十分充填し、溶媒を濾過しながら加圧成形する。得られた成形体に含まれる溶媒を除去後焼結し、希土類永久磁石の焼結体を得る。

【0015】以下上記工程の中、スラリーのキャビティへの充填に関して説明する。図1は、湿式成形機へのスラリー供給を説明するための図である。下パンチ2が貫装し、キャビティ3を形成するダイス1の上面と、その上面と同一レベルとなるようにダイス1に設置したプレート7の上面を、シリンダー等の移動手段4で摺動する供給ヘッド5を設ける。供給ヘッド5は供給ヘッド本体9と摺動板8からなり、摺動板8は、供給ヘッド5がダイス1上に移動時、キャビティ3の開口部を覆うような寸法である。この時キャビティ3の隅部と外部空間が連通するような流路或いは隙間14を摺動板8に設けている。供給ヘッド本体9と摺動板8を貫通して昇降自在

(昇降装置図示せず)なスラリー供給管6を設ける。スラリー供給管6は、供給ヘッド5がダイス1上に移動時キャビティ3をほぼ均等に分けるような位置であることが望ましい。スラリー供給管6のキャビティ3側の他端には配管11が接続されている。配管11の一端には制御装置12で制御されるスラリー供給手段10、例えば定容積シリンダー又は容積式ポンプが接続されている。スラリー供給手段10はスラリー100を収納した原料タンク13と連結しており、作動量、即ち定容積シリンダーではピストンの移動量や速度、容積式ポンプでは原動機の回転数又は回転時間等、に応じたスラリー100を吐出することができる。制御装置12は、スラリー供給手段10が所望の仕様でスラリー100を供給できるように前記作動量を設定することができる。これにより、スラリー供給手段10は、ほぼ所望量のスラリーを所望の速度で送り出すことができる。送り出されたスラリー100は、配管11を通りスラリー供給管6から、キャビティ3に供給される。

【0016】以下、動作について説明する。ダイス1を上昇して、下パンチ2上部に所定容量のキャビティ3を形成する。次に、移動手段4を作動し、供給ヘッド5をキャビティ3上に摺動する。次いで、スラリー供給管6を下降させ、先端を下パンチ2上面近傍の所定位置に保持する。次にスラリー供給手段10を作動させ、タンク13内のスラリー100を、配管13及びスラリー供給管6を通じてキャビティ3に供給開始する。以降のスラリー充填状況を、図3により説明する。

1) 注入初期 (図3 (a))

スラリー供給管6先端から排出されたスラリー100は、下パンチ2の上面に当たることにより、水平方向に流れが変えられる。

2) 注入中期 (図3 (b))

スラリー100は、下パンチ2の上面に沿って水平方向に流れ、ダイス1と下パンチ2で構成されるキャビティ

3の下隅のエアを押しつつ、スラリーを充填する。

3) 注入終期 (図3 (c))

スラリー100はキャビティ3の底からわき上がるように充填され、キャビティ3内のエアは摺動板8に設けた流路14から外気に排気され、キャビティ3はエアが残留することなくスラリー100で満たされていく。スラリー供給管6の先端と下パンチ2の上面の隙間は、スラリーの濃度等性状と供給速度に合わせて適宜設定する。即ち、隙間が広すぎる場合は、図5で説明したと同様な現象がスラリー供給管6先端と下パンチ2間で生じ、スラリーは空気を巻き込んでしまい、また隙間が狭すぎる場合は、図3に示す横方向へのスラリー流れの速度が加速されて周辺の空気を巻き込んでしまい、供給量のバラツキを生じる結果的になるからである。

【0017】スラリー供給手段10が所定量を供給終了する前に、スラリー供給管6を、先端が摺動板8内に収納されるように上昇させる。この上昇動作は上述した注入中期から徐々に行なってもよいし、注入終期に行なってもよく、スラリー供給管6が占有していた容積分供給が間に合うタイミングであればよく、スラリー供給管の大きさ、挿入深さ又はスラリー供給速度に合わせて適宜設定する。所定量供給完了後、移動手段4を作動させ、供給ヘッド5をダイス1上から退避させる。なお、スラリーの供給量はキャビティ体積に一致していなくてもよく、少し多目になってもよい。この場合、摺動板8でキャビティ3の上部が覆われているため、余分なスラリーは供給ヘッド5内に保持され、供給ヘッド5の退避時一緒に持ち去られるため周囲にあふれることはない。この後、脱液口と濾過フィルターを備えた上パンチ (図示せず) が下降し、磁場中で加圧成形する。尚、本説明では1個のキャビティの場合について述べたが、金型に2個以上のキャビティがある場合は、供給ヘッドを順次キャビティ上に移動し、上述したと同様にしてスラリーを供給して行けばよい。

【0018】

【実施例1】次に実施例1について説明する。微粉碎工程ではジェットミル粉碎法を用い、Nd-Fe-B系希土類永久磁石原料合金を数100 μ mに解砕した酸素量が1300ppm程度の粗粉を、不活性高圧ガス雰囲気中で粒子どうしを衝突させて微粉を得た。不活性ガスは窒素ガスを用い、粉碎ガス雰囲気中の酸素濃度は1ppm未満とし、得られた微粉の平均粒度は約5 μ mであり、その組成は重量百分率でNd28.01%、Pr0.57%、Dy1.50%、B1.06%、Co2.06%、Nb0.67%、Al0.10%、Ga0.08%、Cu0.10%、残部Feであった。微粉の回収工程では、粉碎機の微粉排出口に鉱物油の溶媒を入れた回収容器を直結し、微粉が大気に触れないように溶媒中に回収した。鉱物油は、出光興産 (株) 製、商品名LA35を用いた。本鉱物油の性状は、分溜点約272℃、動

粘度 2.4 c s t、引火点 107°C である。微粉回収の結果、微粉と溶媒の重量比は 40 重量% となった。スラリー化の工程では、回収容器内の微粉と溶媒は、パドル型攪拌翼を設けた攪拌機により、充分に混合してスラリー化した。スラリー濃度調整工程では、重量濃度 75 w t % を目標濃度とし、濃度ばらつきを ± 1.0 w t % 以内に調整した。

【0019】成形工程では、スラリーをネジ式容積型ポンプを用いて、図 8 (a) に示すような矩形状部品を成形すべく、成形機の矩形状キャビティ (縦 7 mm、横 4.5 mm、深さ 80 mm) に供給した。まず、スラリー供給管がキャビティ開口部のほぼ中央部に位置するように供給ヘッドを位置決めした。スラリー供給管として外径 5 mm、内径 4 mm の塩化ビニールパイプを用いた。次にスラリー供給管をシリンダーで下降させ、下パンチ上面から 4 mm の位置で停止させ、ネジ式容量ポンプを作動して、供給量 6.3 c m³/sec でスラリーをキャビティ内に吐出した。スラリー供給管はスラリー供給開始後 3.5 秒経過後、スラリーを供給しながら 0.5 秒で上昇させ、上昇完了時にはキャビティにスラリーが充填するようにした。その後、水平方向に 13 k O e の配向磁場を印加した状態で、上パンチを下降させ、スラリー中の溶媒を布製濾布を介して濾過しながら、1 トン / c m² の圧力で垂直方向に加圧成形し成形体を得た。成形体中には約 10 重量% の溶媒が残存した。成形体は脱溶媒焼結処理まで、不活性ガス (N₂ ガス) を導入した容器内に 6 時間保管した。脱溶媒工程では、成形体中に含まれる溶媒を、焼結前に真空中加熱により除去した。真空度 3×10^{-2} T o r r、成形体加熱温度 200°C、加熱時間 1 時間で溶媒が完全に除去できることを確認した。焼結工程では、成形体の溶媒除去後そのまま真空状態を保ち真空中で昇温し、真空度 4×10^{-4} T o r r、焼結温度 1080°C、焼結時間 2 時間で焼結を行い焼結体を得た。焼結体の寸法は約 5 × 3.7 × 6.6 mm、焼結体の密度は 7.62 g / c m³ であった。この焼結体に、900°C × 1 時間と 500°C × 2 時間の熱処理を各 1 回施した。

【0020】本実施例で得られた焼結体重量の分布を図 9 に示す。重量ばらつきは 96 ± 1.4 g (± 1.4 %) であった。焼結体重量ばらつきは成形体重量バラツキと対応するので、成形体重量ばらつきは目標の 3% 以内を満たしていると判断できる。磁気特性は、成形ロットを問わず、残留磁束密度 B r 13.6 ~ 13.7 k G、保磁力 i H c 15.0 ~ 15.3 k O e、最大エネルギー積 (B H) m a x 45.0 ~ 45.2 M G O e が安定して得られた。なお、焼結体の組成は重量百分率で Nd 28.01%、Pr 0.57%、Dy 1.50%、B 1.06%、Co 2.06%、Nb 0.67%、Al 0.10%、Ga 0.08%、Cu 0.10%、O 0.17%、N 0.045%、C 0.07%、残部 F e であ

った。

【0021】

【実施例 2】次に、実施例 2 について説明する。実施例 1 で微粉碎し作製したと同様のスラリーを、図 8 (b) に示すようなリング品を成形すべく成形機のリング状キャビティ (外径 50 mm、厚さ 4 mm、深さ 60 mm) に供給した。供給ヘッドには 4.6 mm の間隔を隔てて 2 本のスラリー供給管を配置した。スラリー供給管は外径 3.4 mm、内径 2.8 mm のステンレスパイプを用いた。スラリー供給管には 1 台のネジ式容積型ポンプから配管を分岐して接続したが、個々にネジ式容積型ポンプを設け接続してもよい。供給ヘッドを、2 本のスラリー供給管の中心がキャビティのリング中心にくるように位置決めした後、2 本のスラリー供給管を同時にシリンダーで下降させ、下パンチ上面から 3 mm の位置で停止させた。ネジ式容量ポンプを作動して、2 本のスラリー供給管から各々供給量 3.5 c m³/sec でキャビティに吐出した。スラリー供給管はスラリー供給開始後 2.5 秒経過後、スラリーを供給しながら 2.5 秒で上昇させ、上昇完了時にはキャビティにスラリーが充填するようにした。磁界強度 10 k O e でラジアル配向し、成形圧 0.8 t / c m² で、印加磁界と垂直方向に加圧成形し、成形体を得た。この成形体を、 5×10^{-2} T o r r の真空中で、200°C × 2 時間加熱して脱油処理し、次いで 5×10^{-4} T o r r の真空中で、1070°C × 5 時間の条件で焼結し焼結体を得た。焼結体の概略寸法は外径 37 mm、厚さ 3 mm、長さ 50 mm となり、密度は 7.62 g / c m³ であった。この焼結体に、900°C × 1 時間と 500°C × 2 時間の熱処理を各 1 回施した。磁気特性を測定したところ、B r 13.0 k G、i H c 16.0 k O e、最大エネルギー積 (B H) m a x 40.1 M G O e という値が得られた。

【0022】

【発明の効果】以上述べたように、本発明は次の効果を有する。

- 1) スラリーをキャビティの隅々まで充填して成形することができるので、空気の巻込みが少なく形状の安定した重量バラツキの少ない希土類永久磁石を製造することができる。
- 2) 開口部が狭く深さの大きいキャビティにスラリーを隅々まで充填することができるので、従来乾粉でも成形できなかった薄肉縦長品でも、湿式で成形することができる。
- 3) 薄肉縦長品を横磁場成形で成形できるので、縦磁場成形したものより高特性品を得ることができる。
- 4) 従来できなかった最終形状がアーク状やリング状等曲面を有する薄肉縦長品を横磁場成形で成形できる。
- 5) 薄肉縦長品を横磁場成形で成形できるので、最終製品の形状に近い形状の成形体を得ることができ、ブロック品を横磁場成形してから加工するよりも、形状の自由

度が高くかつ製造コストが低く抑えられる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明を成すスラリー供給装置の概念図。

【図 2】 希土類永久磁石の製造工程図を示す。

【図 3】 本発明を成すスラリー供給状況を示す図。

【図 4】 従来のスラリー供給装置の一例を示す図。

【図 5】 上記装置におけるスラリー供給状況を示す図。

【図 6】 磁場成形種類と残留磁束密度の濃度依存性を示す図。

【図 7】 良好に製造できる希土類永久磁石の短辺相当寸法と深さ寸法の関係を示す図。

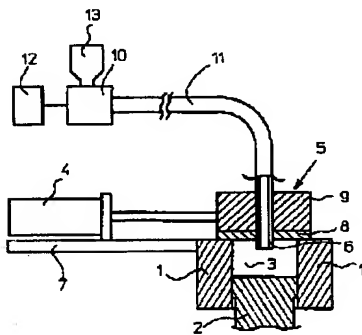
【図 8】 成形品の形状例を示す図。

【図 9】 焼結体の重量バラツキを示す図。

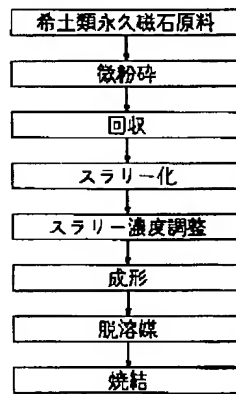
【符号の説明】

- 1 ダイス
- 2 下パンチ
- 3 キャビティ
- 4 移動手段
- 5 供給ヘッド
- 6 スラリー供給管
- 8 摺動板
- 10 スラリー供給手段
- 12 制御装置
- 13 タンク
- 14 流路
- 55 従来の原料供給装置の供給ヘッド
- 56 従来の原料供給装置の供給ノズル
- 100 スラリー

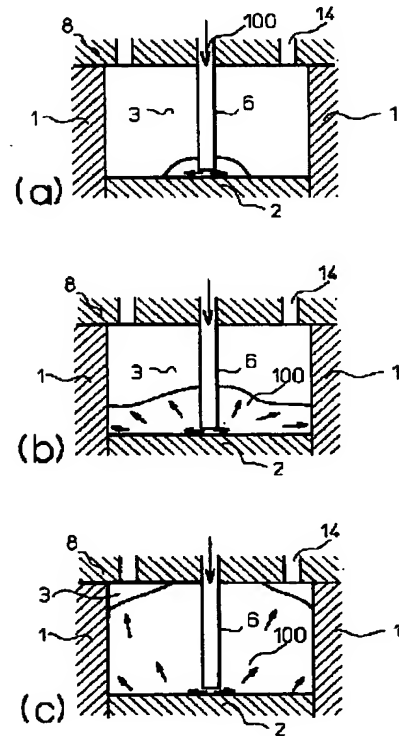
【図 1】



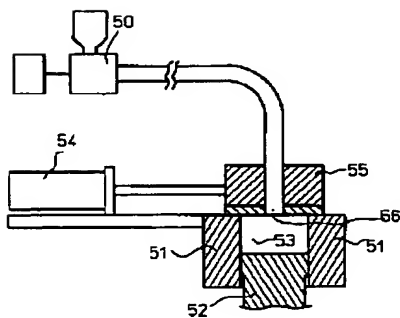
【図 2】



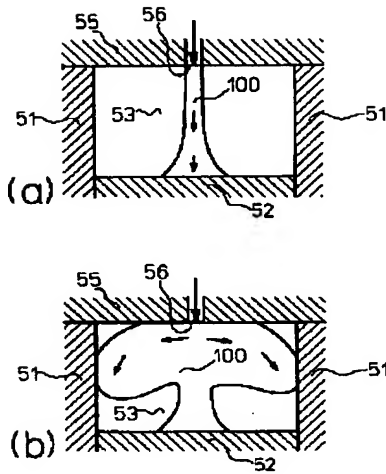
【図 3】



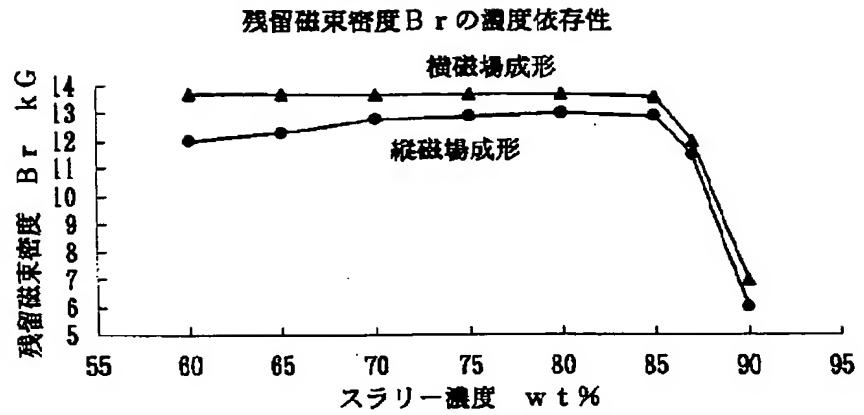
【図 4】



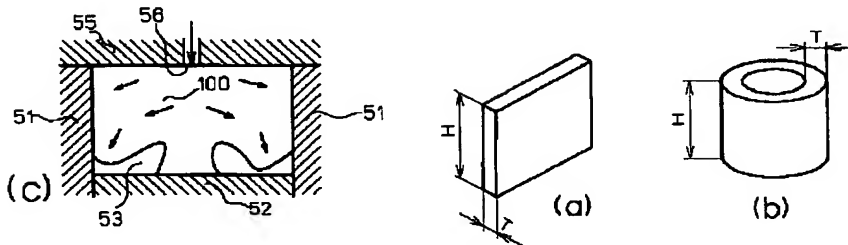
【図5】



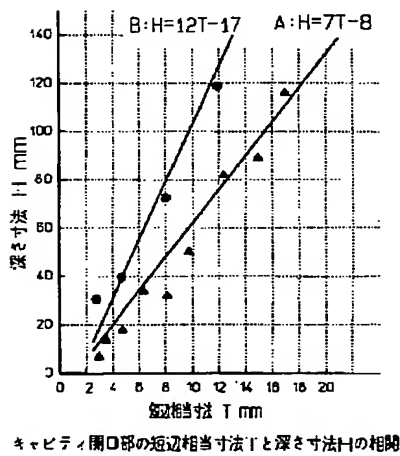
【図6】



【図8】



【図7】



【図9】

